

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-178417

(43)Date of publication of application : 27.06.2000

(51)Int.Cl.

C08L 67/02  
C08K 3/00  
C08K 3/02  
C08K 3/04  
C08K 5/098  
C08K 5/13  
C08K 5/20  
C08K 5/524  
C08K 7/02  
C08K 7/14  
C08K 9/04  
C08K 9/08  
C08L 23/00  
C08L 69/00  
// B29C 45/14  
(C08L 67/02  
C08L 69:00  
C08L 23:00  
C08L 61:06  
C08L 71:12  
C08L 27:12  
C08L 83:04 )  
B29K 67:00

(21)Application number : 10-361762

(71)Applicant : TORAY IND INC

(22)Date of filing : 21.12.1998

(72)Inventor : ISHII HIROMITSU  
KOMORI KENJI  
MATSUMOTO HIDEKI  
YAMAUCHI KOJI

(54) FLAME RETARDANT POLYBUTYLENE TEREPHTHALATE RESIN COMPOSITION FOR ELECTRICAL AND ELECTRONIC PARTS FOR ONBOARD USE AND ELECTRICAL AND ELECTRONIC PARTS FOR ONBOARD USE COMPRISING THE SAME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a flame retardant polybutylene terephthalate resin composition for electrical and electronic parts for onboard use excellent in flame retardance and heat, impact and heat cycle resistances.

SOLUTION: This composition is obtained by compounding (A) 100 pts.wt. of a polybutylene terephthalate with (B) 1-200 pts.wt. of a polycarbonate and/or a polyethylene terephthalate, (C) 0.1-75 pts.wt. of a phenol resin and/or a phenoxy resin, (D) 0.1-50 pts.wt. of a red phosphorus having 0.1-1,000  $\mu\text{S}/\text{cm}$  electroconductivity, (E) 1-200 pts.wt. of a fibrous reinforcing material, (F) 0-100 pts.wt. of a polyolefin resin, (G) 0-30 pts.wt. of an inorganic layer compound, (H) 0-10 pts.wt. of a fluorine-based resin, (I) 0-10 pts.wt. of a silicone-based compound, (J) 0-30 pts.wt. of a lubricant, (K) 0-30 pts.wt. of carbon black and (L) 0-10 pts.wt. of a hindered phenolic stabilizer and/or a phosphite-based stabilizer.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application]

converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(18) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2000-178417  
(P2000-178417A)

(43) 公開日 平成12年6月27日 (2000. 6. 27)

| (51) Int. Cl. | 識別記号  | F I           | テマコード (参考) |
|---------------|-------|---------------|------------|
| C 0 8 L       | 67/02 | C 0 8 L 67/02 | 4 F 2 0 6  |
| C 0 8 K       | 3/00  | C 0 8 K 3/00  | 4 J 0 0 2  |
|               | 3/02  | 3/02          |            |
|               | 3/04  | 3/04          |            |
|               | 5/098 | 5/098         |            |

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 13 頁) 最終頁に続く

|           |                            |          |  |
|-----------|----------------------------|----------|--|
| (21) 出願番号 | 特願平10-361762               | (71) 出願人 | 000003159<br>東レ株式会社<br>東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号    |
| (22) 出願日  | 平成10年12月21日 (1998. 12. 21) | (72) 発明者 | 石井 博光<br>愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東<br>レ株式会社名古屋事業場内 |
|           |                            | (72) 発明者 | 小森 研司<br>愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東<br>レ株式会社名古屋事業場内 |
|           |                            | (72) 発明者 | 松本 英樹<br>愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東<br>レ株式会社名古屋事業場内 |

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物およびそれからなる車載用電気・電子部品

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 難燃性、耐熱性、耐衝撃性および耐ヒートサイクル性に優れた車載用電気・電子部品用の難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

【解決手段】 (A) ポリブチレンテレフタレート100重量部に対して、(B) ポリカーボネートおよび/またはポリエチレンテレフタレート1~200重量部、(C) フェノール樹脂および/またはフェノキシ樹脂0.1~75重量部、(D) 導電率が0.1~1000  $\mu S/cm$  の赤リン0.1~50重量部、(E) 繊維状強化材1~200重量部、(F) ポリオレフィン樹脂0~100重量部、(G) 無機層状化合物0~30重量部、(H) フッ素系樹脂0~10重量部、(I) シリコン系化合物0~10重量部、(J) 滑剤0~30重量部、(K) カーボンブラック0~30重量部、(L) ヒンダードフェノール系安定剤および/またはホスファイト系安定剤0~10重量部を配合。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) ポリブチレンテレフタレート樹脂100重量部に対して、(B) ポリカーボネート樹脂および／またはポリエチレンテレフタレート樹脂1～200重量部、(C) フェノール系樹脂および／またはフェノキシ樹脂0.1～75重量部、(D) 導電率が0.1～1000 $\mu$ S/cmの赤リン0.1～50重量部（ただし導電率は、赤燐5gに純水100mLを加え、121℃で100時間抽出処理し、赤燐をろ過した後のろ液を250mLに希釈した抽出水の導電率とする）、(E) 繊維状強化材1～200重量部、(F) ポリエチレン樹脂およびポリオレフィン系共重合体のうちのいずれか1種以上のポリオレフィン樹脂0～100重量部、(G) 無機層状化合物0～30重量部、(H) フッ素系樹脂0～10重量部、(I) シリコン系化合物0～10重量部、(J) 滑剤0～30重量部、(K) カーボンブラック0～30重量部、(L) ヒンダードフェノール系安定剤および／またはホスファイト系安定剤0～10重量部を配合してなる車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

【請求項2】 (D) 赤リンが、熱硬化性樹脂で被覆された赤リンである請求項1記載の車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

【請求項3】 (F) ポリオレフィン樹脂として、無水マレイン酸またはグリシジルメタクリレートが共重合されたポリオレフィン系共重合体を必須成分として配合してなる請求項1～2のいずれか記載の車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

【請求項4】 (E) 繊維状強化材がガラス繊維である請求項1～3のいずれか記載の車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

【請求項5】 (F) 繊維状強化材が、表面にシランカップリング剤やエポキシ化合物を主成分とする集束剤が付着しているガラス繊維である請求項4記載の車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

【請求項6】 (B) の必須成分としてポリカーボネート樹脂を配合し、かつ、(J) 滑剤として、一部あるいは全部がカルシウムやナトリウムでケン化あるいは結合されている滑剤を必須成分として配合する場合であって、さらに(M) ホスファイト系安定剤および／または3価のリン化合物を0.1～5重量部配合してなる請求項1～5のいずれか記載の車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物。

【請求項7】 請求項1～6のいずれか記載の車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる車載用電気・電子部品。

【請求項8】 請求項1～6のいずれか記載の車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物からなる、金属がインサート成形された車載用電

気・電子部品。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、特定の非ハロゲン系難燃剤を使用した難燃性強化ポリブチレンテレフタレート樹脂製の車載用電気・電子部品用樹脂組成物およびそれからなる車載用電気・電子部品に関する。更に詳しくは、耐熱性、衝撃強度および耐ヒートサイクル性に優れ、かつ、難燃性に優れる車載用電気・電子部品のための樹脂組成物および車載用電気・電子部品に関する。

## 【0002】

【従来の技術】ポリブチレンテレフタレート樹脂(PBT)は、その優れた諸特性を生かし、機械機構部品、電気電子部品、自動車部品などの幅広い分野に利用されている。また、PBTに繊維強化材を複合することによって、さらに機械物性や耐熱性に優れる材料として広く用いられている。その繊維強化材の中ではとくにガラス繊維が多く使用されている。

【0003】PBTは本質的に可燃性であるため、自動車室内に車載されるカーステレオ、テレビ、カーナビ内部のフライバックトランス、フォーカスケース、トランス部材および接続部品のコネクターなどの車載用電気・電子部品、あるいは自動車エンジンルームに車載されるイグニッションコイル外装ケース、クラッチボビン、エアフローセンサーボディ、ディストリービュターカバーなどの車載用電気・電子部品においては、一般の化学的、物理的諸特性のバランス以外に、火災に対する安全性、すなわち難燃性が要求される場合が多い。また、自動車は夏・冬などの四季あるいは夜間・昼間などの外気の温度の影響を受けやすいため、樹脂に金属などをインサート成形し、高温と低温を繰り返しテストする耐ヒートサイクル性試験において短時間(サイクル)にクラックが発生しないことも要求される。さらにまた、自動車室内や自動車エンジンルーム内は高温になり易く、耐熱性が要求される場合が多い。

【0004】PBTに難燃性を付与する方法としては、難燃剤としてハロゲン系有機化合物、さらに難燃助剤としてアンチモン化合物を樹脂にコンパウンドする方法が一般的である。しかしながら、この方法には、燃焼の際の発煙量が多い傾向があった。そこで、近年これらハロゲンを全く含まない難燃剤を用いることが強く望まれるようになった。

【0005】これまで、ハロゲン系難燃剤を使わずに難燃化する方法としては、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウムなどの水和金属化合物を添加することが広く知られているが、十分な難燃性を得るためには、上記水和金属化合物を多量に添加する必要がある、PBT本来の特性が失われるという欠点を有していた。

【0006】一方、このような水和金属化合物を使わずに熱可塑性樹脂を難燃化する方法として赤リンを添加す



ることが、特開昭51-150553号公報、特開昭58-108248号公報、特開昭59-81351号公報、特開平5-78560号公報、特開平5-287119号公報、特開平5-295164号公報、特開平5-320486号公報、特開平5-339417号公報等で提案されている。

#### 【0007】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、これらの樹脂組成物はいずれもハロゲン系難燃剤を用いない有用な難燃性樹脂材料ではあるが、これらから得られる車載用電気・電子部品は、衝撃強度、耐熱性あるいは耐ヒートサイクル性の何れかの性質が低下するため、破壊し易い、ハンダ付け時に熔融変形を起こし易い、製品の長期使用時にクラックがはいる可能性があるなどの問題を有していた。

【0008】そこで本発明は、非ハロゲン系難燃剤を使用し、耐熱性、衝撃強度、耐ヒートサイクル性および難燃性に優れ、車載用電気・電子部品用として好適な難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物およびそれからなる車載用電気・電子部品を提供することを課題とする。

#### 【0009】

【課題を解決するための手段】本発明者らは上記課題の解決のために鋭意検討を重ねた結果、PBTに、特定量のポリカーボネート樹脂および／またはポリエチレンテレフタレート樹脂、フェノール樹脂および／またはフェノキシ樹脂、赤リンおよび繊維状強化材を配合してなる難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物が、高度に優れた難燃性を保持しつつ、特異的に耐熱性、衝撃強度および耐ヒートサイクル性が向上するため車載用電気・電子部品として極めて有用であることを見だし、本発明をなすに至った。

【0010】すなわち本発明は、(A)ポリブチレンテレフタレート樹脂100重量部に対して、(B)ポリカーボネート樹脂および／またはポリエチレンテレフタレート樹脂1～200重量部、(C)フェノール系樹脂および／またはフェノキシ樹脂0.1～75重量部、

(D)導電率が0.1～1000 $\mu$ S/cmの赤リン0.1～50重量部（ただし導電率は、赤燐5gに純水100mLを加え、121℃で100時間抽出処理し、赤燐をろ過した後のろ液を250mLに希釈した抽出水の導電率とする。）、(E)繊維状強化材1～200重量部、(F)ポリエチレン樹脂およびポリオレフィン系共重合体のうちのいずれか1種以上のポリオレフィン樹脂0～100重量部、(G)無機層状化合物0～30重量部、(H)フッ素系樹脂0～10重量部、(I)シリコン系化合物0～10重量部、(J)滑剤0～30重量部、(K)カーボンブラック0～30重量部、(L)ヒンダードフェノール系安定剤および／またはホスファイト系安定剤0～10重量部を配合してなる車載用電気

・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物、さらに、それからなる車載用電気・電子部品を提供するものである。

#### 【0011】

【発明の実施の形態】以下に本発明の車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物、さらに、それからなる車載用電気・電子部品について具体的に説明する。

【0012】本発明で用いる(A)ポリブチレンテレフタレート樹脂とは、テレフタル酸あるいはそのエステル形成性誘導体と1,4-ブタンジオールあるいはそのエステル形成性誘導体とを主成分とする原料から重縮合反応によって得られる重合体あるいは共重合体である。これら重合体あるいは共重合体の好ましい例としては、ポリブチレンテレフタレート、ポリブチレン(テレフタレート/イソフタレート)、ポリブチレン(テレフタレート/アジペート)、ポリブチレン(テレフタレート/セバケート)、ポリブチレン(テレフタレート/デカンジカルボキシレート)、ポリブチレン(テレフタレート/ナフタレート)などが挙げられ、単独で用いても2種以上混合して用いてもよい。なお、ここで「/」は、共重合を意味する。

【0013】また、この重合体または共重合体は、 $\text{O}$ -クロロフェノール溶媒を用いて25℃で測定した固有粘度が0.36～1.60、特に0.52～1.25の範囲にあるものが好適である。固有粘度が0.36未満では、衝撃強度が不良であり、固有粘度が1.60を越えると成形性が不良になりいずれも好ましくない。また、(A)ポリブチレンテレフタレート樹脂の固有粘度が0.36～1.60の範囲内であれば、固有粘度の異なるポリブチレンテレフタレート樹脂の2種以上を併用してもよい。

【0014】さらにこれらポリブチレンテレフタレート重合体または共重合体は、 $m$ -クレゾール溶液をアルカリ溶液で電位差滴定して求めたCOOH末端基量が1～50eq/t（ポリマ1トン当りの末端基量）の範囲にあるものが耐久性、異方性抑制効果の点から好ましく使用できる。COOH末端基量が1未満では異方性抑制効果が充分でなく、またCOOH末端基量が50を越えると耐久性が不良になりいずれも好ましくない。

【0015】本発明で(B)成分として用いるポリカーボネート樹脂は、芳香族2価フェノール系化合物とホスゲン、または炭酸ジエステルとを反応させることにより得られる芳香族ホモまたはコポリカーボネート樹脂であり、その粘度平均分子量は10000～1000000の範囲のものであればよい。その粘度平均分子量の範囲内であれば、粘度平均分子量の異なるポリカーボネート樹脂の2種以上を併用してもよい。

【0016】ここで2価フェノール系化合物としては、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、

2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)プロパン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジフェニル)ブタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジエチルフェニル)プロパン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジエチルフェニル)プロパン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1-フェニル-1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン等が使用でき、これら単独あるいは混合物として使用することができる。

【0017】本発明で(B)成分として用いるポリエチレンテレフタレート樹脂は、テレフタル酸を酸成分にエチレングリコールをグリコール成分に用いてなる、主鎖にエステル結合を有する高分子量の熱可塑性ポリエステル樹脂であり、この他に酸成分として、イソフタル酸、アジピン酸、シュウ酸などを、また、グリコール成分として、グリコール成分として、プロピレングリコール、1, 4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、デカメチレングリコール、シクロヘキサンジメタノール、シクロヘキサンジオールなど、あるいは分子量400~6000の長鎖グリコール、すなわちポリエチレングリコール、ポリ-1, 3-プロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコールなどを20モル%以下用いることもできる。

【0018】また、そのポリエチレンテレフタレート樹脂は、 $\alpha$ -クロロフェノール溶媒を用いて25℃で測定した固有粘度が0.36~1.60、特に0.45~1.15の範囲にあるものが好適である。固有粘度が0.36未満では、衝撃強度が不良であり、固有粘度が1.60を越えると成形性が不良になりいずれも好ましくない。また、このポリエチレンテレフタレート樹脂は必要に応じ、固有粘度の異なる2種以上を併用することもできる。

【0019】(B)成分のポリカーボネート樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂は、どちらか一方のみの配合でも、また両方の併用でもよく、その配合量(併用の場合はその合計)は、(A)ポリブチレンテレフタレート樹脂100重量部に対して、1~200重量部、好ましくは2~190重量部であり、1重量部未満では難燃性が損なわれ、200重量部を越すと結晶化速度が遅くなり、射出成形性が損なわれるため不適当である。

【0020】本発明で(C)成分として使用されるフェノール系樹脂は、フェノール性水酸基を複数有する

(共)重合体であり、例えば、ノボラック型、レゾール型や熱反応型の樹脂、あるいはこれらを変性した樹脂が挙げられる。これらは硬化剤未添加の未硬化樹脂でも、半硬化樹脂でも、あるいは硬化樹脂であってもよい。中

でも、硬化剤未添加で、非熱反応性であるフェノールノボラック樹脂が難燃性、機械特性、経済性の点で好ましい。その形状は特に制限されず、粉碎品、粒状、フレーク状、粉末状、針状、液状などいずれも使用できる。また、そのフェノール系樹脂は必要に応じ1種または2種以上で使用する事ができる。

【0021】その1種のノボラック型フェノール樹脂は、例えば、フェノール類とアルデヒド類のモル比を1:0.7~1:0.9となるような比率で反応槽に仕込み、更にシュウ酸、塩酸、硫酸、トルエンスルホン酸等の触媒を加えた後、加熱し、所定の時間還流反応を行い、その後、生成した水を除去するため真空脱水あるいは静置脱水し、更に残っている水と未反応のフェノール類を除去する方法により得ることができる。これらの樹脂あるいは複数の原料成分を用いることにより得られる共縮合フェノール樹脂は単独あるいは2種以上で用いることができる。

【0022】また、レゾール型フェノール樹脂は、例えば、フェノール類とアルデヒド類のモル比を1:1~1:2となるような比率で反応槽に仕込み、水酸化ナトリウム、アンモニア水、その他の塩基性物質などの触媒を加えた後、ノボラック型フェノール樹脂と同様の反応および処理をして得ることができる。

【0023】ここで、フェノール類とはフェノール、 $o$ -クレゾール、 $m$ -クレゾール、 $p$ -クレゾール、チモール、 $p$ -tert-ブチルフェノール、tert-ブチルカテコール、カテコール、イソオイゲノール、 $o$ -メトキシフェノール、4, 4'-ジヒドロキシフェニル-2, 2-プロパン、サルチル酸イソアミル、サルチル酸ベンジル、サルチル酸メチル、2, 6-ジ-tert-ブチル- $p$ -クレゾール等が挙げられる。これらのフェノール類は1種または2種以上用いることができる。一方、アルデヒド類とはホルムアルデヒド、パラホルムアルデヒド、ポリオキシメチレン、トリオキサン等が挙げられる。これらのアルデヒド類は必要に応じて1種または2種以上用いることができる。

【0024】フェノール系樹脂の分子量は特に限定されないが、好ましくは数平均分子量で200~2,000であり、特に400~1,500の範囲のものが機械的物性、成形加工性、経済性に優れ好ましい。なおそのフェノール系樹脂の分子量は、テトラヒドロフラン溶液、ポリスチレン標準サンプルを使用することによりゲルパーミエーションクロマトグラフィ法で測定できる。

【0025】本発明で(C)成分として用いるフェノキシ樹脂は、芳香族2価フェノール系化合物とエピクロルヒドリンとを各種の配合割合で反応させることにより得られる(共)重合体であり、その配合割合により分子量は異なる。そのフェノキシ(共)重合体の分子量は特に制限はないが、粘度平均分子量が100~100,000の範囲のものがよい。



【0026】ここで2価フェノール系化合物としては、  
 2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、  
 2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)プロパン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、  
 1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、  
 2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジフェニル)ブタン、  
 2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジエチルフェニル)プロパン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジエチルフェニル)プロパン、  
 1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1-フェニル-1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、  
 2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン等が使用でき、これら単独あるいは混合物として使用することができる。

【0027】その形状は特に制限されず、粉碎品、粒状、フレーク状、粉末状、針状、液状などいずれも使用できる。また、そのフェノキシ系樹脂は必要に応じ、1種または2種以上使用することができ、さらにまた必要に応じて前記のフェノール系樹脂の1種以上と併用して用いてもよい。

【0028】本発明の(C)フェノール系樹脂および/またはフェノキシ系樹脂の配合量は、(A)ポリブチレンテレフタレート樹脂100重量部に対して0.1~75重量部、好ましくは0.5~50重量部であり、さらに好ましくは1~50重量部であり、0.1重量部未満では、難燃性が低下し、また、75重量部を越すと衝撃強度が低下するため不適當である。

【0029】本発明で(D)成分として使用される赤リンは、そのままでは不安定であり、また、水に徐々に溶解したりする性質を有するので、これを防止する処理を施したものが好ましく用いられる。このような赤リンの処理方法としては、特開平5-229806号公報に記載の、赤リンの粉碎を行わず、赤リン表面に水や酸素との反応性が高い破砕面を形成せずに、赤リンを微粒子化する方法、赤リンに水酸化アルミニウムまたは水酸化マグネシウムを微量添加して赤リンの酸化を触媒的に抑制する方法、赤リンをパラフィンやワックスで被覆し、水分との接触を抑制する方法、ε-カプロラクタムやトリオキサンと混合することにより安定化させる方法、赤リンをフェノール系、メラミン系、エポキシ系、不飽和ポリエステル系などの熱硬化性樹脂で被覆することにより安定化させる方法、赤リンを銅、ニッケル、銀、鉄、アルミニウムおよびチタンなどの金属塩の水溶液で処理して、赤リン表面に金属リン化合物を析出させて安定化させる方法、赤リンを水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化チタン、水酸化亜鉛などで被覆する方法、赤リン表面に鉄、コバルト、ニッケル、マンガン、スズなどで無電解メッキ被覆することにより安定化させる方法およびこれらを組合せた方法が挙げられるが、好

ましくは、赤リンをフェノール系、メラミン系、エポキシ系、不飽和ポリエステル系などの熱硬化性樹脂で被覆することにより安定化させる方法や赤リンを水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化チタン、水酸化亜鉛などで被覆することにより安定化させる方法である。また、上記の安定化方法を併用して用いてもよい。

【0030】また、樹脂に配合される前の赤リンの平均粒径は、成形品の難燃性、衝撃強度や外観の点から50~0.01μmのものが好ましく、さらに好ましくは、45~0.1μmのものである。また、本発明で使用される(D)赤リンは、熱水中で抽出処理した時の導電率(即ち、赤リン5gに純水100mLを加え、オートクレーブ中、121℃で100時間抽出処理し、赤リンろ過後のろ液を250mLに希釈した抽出水で測定される導電率)は、得られる成形品の難燃性、機械強度の点から0.1~1000μS/cmであり、好ましくは0.1~800μS/cm、さらに好ましくは0.1~500μS/cmである。このような赤リンの市販品としては、燐化学工業社製“ノーバエクセル140”、“ノーバエクセルF5”およびこれらの市販品相当品が挙げられる。

【0031】本発明における導電率が0.1~1000μS/cmの赤リンの添加量は、ポリブチレンテレフタレート100重量部に対して0.1~50重量部、好ましくは0.1~30重量部、0.1~25重量部、より好ましくは1~20重量部、さらに好ましくは2~20重量部である。なかでも3~15重量部が、特に好ましい。

【0032】本発明の(D)赤リンは、さらに赤リンの安定剤として金属酸化物を添加することにより、押出し、成形時の安定性や強度、耐熱性などを向上させることができる。このような金属酸化物の具体例としては、酸化カドミウム、酸化亜鉛、酸化第一銅、酸化第二銅、酸化第一鉄、酸化第二鉄、酸化コバルト、酸化マンガン、酸化モリブデン、酸化スズおよび酸化チタンなどが挙げられるが、なかでも酸化カドミウム、酸化第一銅、酸化第二銅、酸化チタンが好ましく、さらに好ましくは酸化第一銅、酸化第二銅、酸化チタン、特に好ましくは酸化チタンである。特に酸化チタンは赤リンの安定剤としてだけでなく、得られる成形品の非着色性や赤リンの分散性を向上させる効果を有する。その金属酸化物の添加量は機械物性、射出成形性の面からポリブチレンテレフタレート(A)100重量部に対して0.01~20重量部が好ましく、特に好ましくは0.1~10重量部である。

【0033】本発明で用いる(E)繊維状強化材としては、ガラス繊維、アラミド繊維、炭素繊維などが挙げられ、特にガラス繊維が好ましい。上記のガラス繊維としては、通常のPBTの強化材に使用されるチョップドストランドタイプやローピングタイプのガラス繊維であり

アミノシラン化合物やエポキシシラン化合物などのシランカップリング剤および／またはビスフェノールAグリシジルエーテルやノボラック系エポキシ化合物などの1種以上のエポキシ化合物などを含有した集束剤で処理されたガラス繊維が好ましく用いられる。

【0034】(E) 繊維状強化材の配合量は(A) ポリブチレンテレフタレート樹脂100重量部に対して、1～200重量部、好ましくは2～190重量部であり、1重量部未満では難燃性に劣り、200重量部を越すと成形時の流動性が大きく損なわれ実用の製造に適さないため不適当である。

【0035】本発明で使用する(F) ポリオレフィン樹脂は、ポリエチレン樹脂やポリオレフィン系共重合体であり、例えば、高密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、ポリエチレン共重合体および上記のポリオレフィン樹脂に酸無水物あるいはグリシジルメタクリレートがグラフトもしくは共重合された共重合体が挙げられ、その中から選ばれる1種または2種以上が使用される。また、上記のポリエチレン共重合体の例としては、エチレンをモノマーとし、共重合可能なモノマーとしてはプロピレン、ブテン-1、酢酸ビニル、イソブレン、ブタジエンあるいはアクリル酸、メタクリル酸等のモノカルボン酸類あるいはこれらのエステル酸類、マレイン酸、フマル酸あるいはイタコン酸等のジカルボン酸類等の通常の方法で製造される共重合体が挙げられる。また、なかでもポリオレフィン樹脂に酸無水物あるいはグリシジルメタクリレートがグラフトもしくは共重合された共重合体がPBTとの相溶性が良く、好ましく用いられる。

【0036】(F) ポリオレフィン樹脂を配合する場合のその配合量は、(A) ポリブチレンテレフタレート樹脂100重量部に対して1～100重量部が好ましく、特に好ましくは1～90重量部以下であり、1重量部未満では、衝撃強度の改良効果が十分でなく、100重量部を越すと難燃性が低下するため好ましくない。

【0037】本発明で用いる(G) 無機層状化合物は、単位結晶層が互いに積み重なり層状結晶構造を持ち劈開性を有している無機化合物である。無機層状化合物の具体例としては、カオリナイト、タルク、ス멕タイト、バーミキュライト、マイカなどの珪酸塩や磷酸ジルコニウム、磷酸チタニウムなどの磷酸塩などが挙げられ、これらの無機層状化合物には、カップリング剤処理あるいは層間の無機イオンを有機イオンとイオン交換する有機化処理が行われていてもよい。また、(G) 無機層状化

合物の添加量は、(A) ポリブチレンテレフタレート100重量部に対し0～30重量部であり、好ましくは0～25重量部であり、30重量部を越すと衝撃強度を損なうため好ましくない。また、無機層状化合物の平均粒径は0.1～4 $\mu$ mであり、好ましくは0.3～3 $\mu$ mであり、4 $\mu$ mを越すと衝撃強度を損なうため好ましくない。

【0038】本発明で用いる(H) フッ素系樹脂は、燃焼時の液滴の落下(ドリップ)が抑制される効果を発現するフッ素系樹脂である。そのようなフッ素系樹脂としては、ポリテトラフルオロエチレン、ポリヘキサフルオロプロピレン、(テトラフルオロエチレン/ヘキサフルオロプロピレン)共重合体、(テトラフルオロエチレン/パーフルオロアルキルビニルエーテル)共重合体、

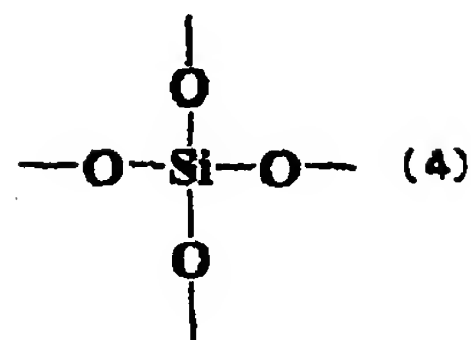
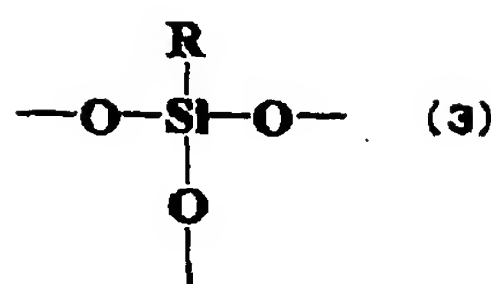
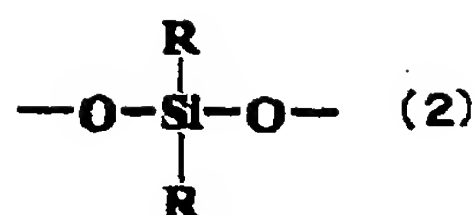
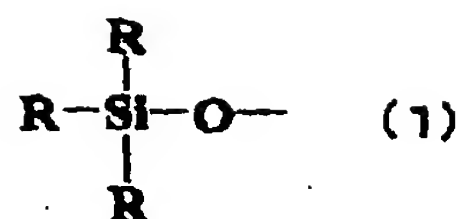
(テトラフルオロエチレン/エチレン)共重合体、(ヘキサフルオロプロピレン/プロピレン)共重合体、ポリビニリデンフルオライド、(ビニリデンフルオライド/エチレン)共重合体などが挙げられるが、中でもポリテトラフルオロエチレン、(テトラフルオロエチレン/パーフルオロアルキルビニルエーテル)共重合体、(テトラフルオロエチレン/ヘキサフルオロプロピレン)共重合体、(テトラフルオロエチレン/エチレン)共重合体、ポリビニリデンフルオライドが好ましく、特にポリテトラフルオロエチレン、(テトラフルオロエチレン/エチレン)共重合体が好ましい。また、(H) フッ素系樹脂の添加量は衝撃強度、成形性の面から(A) ポリブチレンテレフタレート樹脂100重量部に対して通常0～10重量部であり、好ましくは0～8重量部、さらに好ましくは0～6重量部であり、10重量部を越すと衝撃強度を損なうため好ましくない。

【0039】本発明で用いる(I) シリコーン系化合物は、シリコーン樹脂および／またはシリコーンオイルのことである。本発明に使用されるシリコーン樹脂とは、下記一般式(1)～(4)で表される単位およびこれらの混合物から選ばれる化学的に結合されたシロキサン単位からなるポリオルガノシロキサンであり、室温で約200～3000000センチポイズの粘度ものが好ましいが、上記のシリコーン樹脂である限り、それに限定されるものではなく、製品形状がオイル状、パウダー状およびガム状であってもよく、官能基としてエポキシ基、メタクル基およびアミノ基が導入されていてもよい。

【0040】

【化1】





(ここで、Rはそれぞれ飽和または不飽和1価炭化水素基、水素原子、ヒドロキシ基、アルコキシ基、アリール基、ビニルまたはアリル基から選ばれる基を表す。)

【0041】本発明に使用されるシリコンオイルとは、下記一般式(5)で表されるものである。使用するシリコンオイルは、0.65～100000センチトックスの粘度のものが好ましいが、上記のシリコンオイルである限り、それに限定されるものではなく、官能基としてエポキシ基、メタクル基およびアミノ基が導入されていてもよい。

【化2】

(ここで、Rはアルキル基またはフェニル基を表し、nは1以上の整数である。)

【0042】本発明ではシリコン系化合物として、シリコン樹脂および/またはシリコンオイルを使用することができるが、難燃性、耐熱性、耐ヒートサイクル性等の面から、シリコン樹脂が好ましい。

【0043】本発明の(I)シリコン系化合物の添加量は衝撃強度、成形性の面から(A)ポリブチレンテレフタレート樹脂100重量部に対して通常0～10重量部であり、好ましくは0～8重量部、さらに好ましくは0～6重量部であり、10重量部を越すと衝撃強度を損なうため好ましくない。

【0044】本発明の(J)滑剤とは、プラスチック用滑剤であり、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸バリウムなどの金属石鹸、脂肪酸エステル、脂肪酸エステルの塩(一部を塩にした物も含む)、エチレンビスステアロアミドなどの脂肪酸アミド、エチレンジアミンとステアリン酸およびセバシン酸からなる重縮合物あるいはフェレンジアミンとステアリン酸およびセバシン酸の重縮合物からなる脂肪酸アミド、ポリアルキレンワックス、酸無水物変性ポリアルキレンワックスなどが挙げられるがこれに限定されるものではない。(J)滑剤の添加量は、(A)ポリブチレンテレフタレート100重

量部に対し0～30重量部であり、好ましくは0～25重量部であり、30重量部を越すと衝撃強度を損なうため好ましくない。

【0045】また、(B)成分としてポリカーボネート樹脂を配合する際に、滑剤として、一部あるいは全部がカルシウムやナトリウムなどでケン化あるいは結合されている滑剤を用いる場合には、耐熱性や難燃性の悪化を抑制するために、(M)ホスファイト系安定剤および/または3価のリン化合物を0.1～5重量部併用することが好ましい。ここで、ホスファイト系安定剤は、

(L)成分として後述するホスファイト系安定剤と同じである。また、3価のリン化合物としては、限定されるものではないがリン酸、リン酸トリエチル、リン酸トリメチル、ポリリン酸およびリン酸塩などが挙げられ、特にリン酸やリン酸トリエチルが好ましく用いられる。それら配合量は、ポリブチレンテレフタレート樹脂(A)100重量部に対し0.1～5重量部、好ましくは0.1～3重量部、更に好ましくは0.1～2重量部であり、5重量部を越すと衝撃強度を損なうため好ましくない。

【0046】本発明の(K)カーボンブラックとは、プラスチックに一般に配合しうる黒色顔料であり、カーボンブラックの添加量は、(A)ポリブチレンテレフタレート樹脂100重量部に対して0～20重量部、好ましくは0～18重量部、さらに好ましくは0～15重量部であり、30重量部を越すと衝撃強度を損なうため好ましくない。本発明の(L)ヒンダードフェノール系安定剤および/またはホスファイト系安定剤とは、長期間高温にさらされても極めて良好な耐熱エージング性を発揮するために有効な添加剤である。

【0047】このようなヒンダードフェノール系安定剤の例としては、トリエチレングリコールビス[3-

(3-*t*-ブチル-5-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、1,6-ヘキサンジオールビス[3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、ペンタエリスリチルテトラキス[3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、2,2-チオジエチレンビス[3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロ

キシフェニル) プロピオネート]、オクタデシル-3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート、3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホネート ジエチルエステル、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) ベンゼン、ビスもしくはトリス(3-tert-ブチル-6-メチル-4-ヒドロキシフェニル) プロパン、N, N'-ヘキサメチレンビス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ヒドロシナミド)、N, N'-トリメチレンビス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ヒドロシナミド)などが挙げられる。

【0048】また、ホスファイト系安定剤との例としては、トリス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル) ホスファイト、2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル) オクチルオスファイト、トリスノニルフェニルホスファイト、アルキルアリル系ホスファイト、トリアルキルホスファイト、トリアリルホスファイト、ペンタエリスリトール系ホスファイト化合物などが挙げられる。また、本発明においては、このような(L) ヒンダードフェノール系安定剤および/またはホスファイト系安定剤を必要に応じて添加することができるが、その際の添加量は通常、ポリブチレンテレフタレート樹脂

(A) 100重量部に対し0~10重量部、好ましくは0~8重量部、更に好ましくは0~6重量部であり、10重量部を越すと衝撃強度を損なうため好ましくない。

【0049】さらに、本発明の車載用電気・電子部品用難燃性強化ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物には、本発明の目的を損なわない範囲で、ガラスフレーク、タルク、カオリン、マイカなどの板状無機充填材、イオウ系およびアミン系などの酸化防止剤や熱安定剤、紫外線吸収剤、離型剤、可塑剤、紫外線防止剤、本発明以外の難燃剤および染料、顔料を含む着色剤などの通常の添加剤を1種以上添加することができる。

【0050】本発明の車載用電気・電子部品用難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は通常の方法で製造されればよい。例えば、(A) ポリブチレンテレフタレート樹脂、(B) ポリカーボネート樹脂および/またはポリエチレンテレフタレート樹脂、(C) フェノール樹脂および/またはフェノキシ樹脂、(D) 導電率が0.1~1000  $\mu\text{S}/\text{cm}$ の赤リン、(E) 繊維強化材、およびその他必要に応じ配合される(F) ポリオレフィン樹脂、(G) 無機層状化合物、(H) フッ素系樹脂、(I) シリコン系化合物、(J) 滑剤、(K) カーボンブラック、(L) ヒンダードフェノール系安定剤および/またはホスファイト系安定剤などの添加剤を予備混合して、または予備混合せずに押出機などに供給して十分熔融混練することにより樹脂組成物を調製するが、好ましくは、ハンドリング性や生産性の面から、

(A) ポリブチレンテレフタレート樹脂の一部、および

/または(B) ポリカーボネート樹脂および/またはポリエチレンテレフタレート樹脂の一部と(D) 赤リンを一旦熔融混練して赤リン濃度の高い樹脂組成物を製造し、残りの(A) ポリブチレンテレフタレート樹脂や(B) ポリカーボネート樹脂および/またはポリエチレンテレフタレート樹脂に上記の赤リン濃度の高い樹脂組成物およびその他配合成分(任意配合添加剤も含む)を熔融混練することにより調製される。

【0051】上記した赤リン濃度の高い樹脂組成物は、いわゆるマスターペレットの形態で好ましく用いられるが、それに限定されず、いわゆるチップ状、粉末状、あるいはそれらの混合物の形態であってもよい。また、マスターペレット製造時に配合するポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリカーボネート樹脂および/またはポリエチレンテレフタレート樹脂はペレット状であることが好ましいが、それに限定されず、いわゆるチップ状、粉末状あるいは、チップ状と粉末状の混合物であってもよい。さらに、マスターペレットと配合するポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリカーボネート樹脂および/またはポリエチレンテレフタレート樹脂の形態、大きさ、形状はほぼ同等、あるいは互いに似通っていることが均一に混合し得る点で好ましい。また、上記の赤リン濃度の高い樹脂組成物を調整する際に、(C) フェノール樹脂および/またはフェノキシ樹脂あるいは(F) ポリオレフィン樹脂の一部または全量を併用調整してもよい。

【0052】本発明の樹脂組成物の予備混合の手段としてはドライブレンドが挙げられ、その際にヘンシェルミキサー等の機械的な混合装置を用いて混合すればよい。また、(E) 繊維強化材は、2軸押出機などの多軸押出機の元込め部とベント部の途中にサイドフィダーを設置して添加する方法であってもよい。また、樹脂組成物を製造するに際しては、例えば“ユニメルト”あるいは“ダルメージ”タイプのスクリュウを備えた単軸押出機、2軸押出機、3軸押出機およびニーダータイプの混練機などを用いることができる。

【0053】かくして得られる難燃性ポリブチレンテレフタレート樹脂組成物は、通常の方法で成形することができ、例えば射出成形、押出成形、圧縮成形、シート成形、フィルム成形などによって、車載用電気・電子部品として用いられる成形物品とすることができる。

【0054】また、本発明の用途である車載用電気・電子部品は、例えば、自動車室内に車載されるカーステレオ、テレビ、カーナビ内部のフライバックトランス、フォーカスケース、トランス部材および接続部品のコネクターなどの車載用電気・電子部品、あるいは自動車エンジンルームに車載されるイグニッションコイル外装ケース、クラッチボビン、エアフローセンサーボディ、ディストリービュタカバーなどの車載用電気・電子部品であり、例えば、通常の射出成形法によって、また、金属部品の一部を直接車載用電気・電子部品成形品と一

体化させるインサート成形による射出成形法によって、それらの車載用電気・電子部品が製造される。

#### 【0055】

【実施例】以下実施例により本発明の効果を更に詳細に説明する。ここで部とはすべて重量部をあらわす。各特性の測定方法は以下の通りである。

##### (1) 耐熱性 (熱変形温度)

東芝機械製 I S 5 5 E P N 射出成形機を用いて、成形温度 270℃、金型温度 80℃の条件で射出成形されたダンベル試験片を試験片として用い、ASTMD-648 に従い、荷重 0.45MPa の条件で熱変形温度を測定した。

#### 【0056】 (2) 難燃性 (UL94)

東芝機械製 I S 5 5 E P N 射出成形機を用いて、成形温度 270℃、金型温度 80℃の条件で射出成形された難燃性評価用試験片について UL94 に定められている評価基準に従い難燃性を評価した。難燃性レベルは V-0 > V-1 > V-2 > HB の順に低下する。また、試験片の厚みは 1/32"、又は 1/64" とした。厚みが薄いほど難燃性は厳しい判定となる。

##### (3) 衝撃強度

東芝機械製 I S 5 5 E P N 射出成形機を用いて、成形温度 270℃、金型温度 80℃の条件で射出成形された 1/8 インチ厚みのアイゾット衝撃試験片を ASTM D-256 に従い、アイゾット衝撃強度を測定した。

#### 【0057】 (4) 耐ヒートサイクル性

東芝機械製 I S 5 5 E P N 射出成形機を用いて、成形温度 270℃、金型温度 60℃の条件で、縦 47mm、横 47mm、高さ 27mm の材質が S35C 製鉄芯をインサート成形用の金型に設置し、樹脂厚み 1.5mm で被覆した成形品を、TABAI-TSV-40 冷熱試験機を用いて -40℃×1h ~ 130℃×1h を 1 サイクルとする条件で、25 サイクル毎に成形品の観察を行い、クラックが発生するサイクル回数を測定した。

【0058】 [実施例 1~39、比較例 1~13] スクリュー径 30mm、L/D 35 の同方向回転ベント付き 2 軸押出機 (日本製鋼所製、TEX-30α) を用いて、

(A) 固有粘度が 0.85 (25℃、o-クロルフェノール溶液) のポリブチレンテレフタレート樹脂 (以下 PBT と略す) 100 重量部に対して、(B) 固有粘度が 0.65 (25℃、o-クロルフェノール溶液) のポリカーボネート樹脂 (三菱エンブラ製 "ユーピロン" S3000、以下 PC と略す) および/または固有粘度が 0.65 (25℃、o-クロルフェノール溶液) のポリエチレンテレフタレート樹脂 (以下 PET と略す)、

(C) フェノール樹脂 (住友デュレス社製 PR53195) および/またはフェノキシ樹脂 (東都化成社製 "フェノトート" YP-50)、(D) 赤リン (燐化学工業社製 "ノーバエクセル 140") およびその他の添加剤を表 1~2 に示す割合で混合し、元込め部から添加し

た。

【0059】 また、元込め部とベント部の途中にサイドファイダーを設置して (E) ガラス繊維 (日東紡績社製 "CS3J948") を上記と同じく表 1~2 に示す添加量を添加した。そして、混練温度 280℃、スクリュ回転 150rpm の押出条件で熔融混合を行い、ストランド状に吐出し、冷却バスを通し、ストランドカッターによりペレット化した。さらに、得られたペレットを通常の方法で乾燥した後、射出成形により ASTM D-638 に規定されている熱変形温度試験片、UL94 に基づく難燃性評価用試験片、および ASTM D-256 に規定されている 1/8 インチ厚みアイゾット衝撃試験片等の試験片を調製した。各サンプルの熱変形温度、難燃性、衝撃強度および耐ヒートサイクル性、等の測定結果を上記の配合処方と同じく、表 1~2 に示す。

【0060】 また、本発明のその他の添加剤は以下のとおりである。

##### (F) ポリオレフィン樹脂

F-1: ポリプロピレン (三井東圧化学製 "三井ノーブレン" JS-G)

F-2: エチレン/グリシジルメタクリレート共重合体 (住友化学製 "ボンドファースト-E")

F-3: エチレン/ブテン-1/無水マレイン酸共重合体 (三井デュポンポリケミカル製 "MH5020")

(G) 無機層状化合物: 竹原化学製のタルク "HE-5"

(H) フッ素系樹脂: ポリテトラフルオロエチレン (三井デュポンフロロケミカル社製 "テフロン 6J")

(I) シリコン系化合物: シリコンパウダー (東レ・ダウコーニング・シリコン製 DC4-7051)

#### 【0061】 (J) 滑剤

J-1: 脂肪酸エステルの一部をカルシウム塩にした滑剤 (ヘキストジャパン製 "ヘキストワックス OP")

J-2: エチレンジアミンとステアリン酸およびセバシン酸からなる重縮合物 (共栄社化学製 "ライトアマイド WH-255")

J-3: 酸無水物変性ポリアルキレンワックス (三井石油化学工業製 "三井ハイワックス 1105A")

(K) カーボンブラック (三菱化学製 #3050)

##### (L)

L-1: ヒンダードフェノール系安定剤、ペンタエリスルチル-テトラキス [3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート] (チバ・ガイギー社製 "IR-1010")

L-2: ホスファイト系安定剤、ペンタエリスリトール系ホスファイト化合物 (旭電化製 "PEP-24G")

(M) 3 価のリン化合物: 試薬 1 級リン酸トリエチル

#### 【0062】



【表 1】

表 1

| 例      | 組成物 (重量部)   |        |             |                        |                        |         | 特 性       |                  |                         |               |                         |
|--------|-------------|--------|-------------|------------------------|------------------------|---------|-----------|------------------|-------------------------|---------------|-------------------------|
|        | P<br>B<br>T | P<br>C | P<br>E<br>T | ア<br>ル<br>キ<br>ル<br>樹脂 | ア<br>ル<br>キ<br>ル<br>樹脂 | 赤<br>リン | ガラス<br>繊維 | 熱変形<br>温度<br>(℃) | 難燃性<br>(UL-94)<br>1/32" | 衝撃強度<br>(MPa) | 耐ヒート<br>サイクル性<br>(サイクル) |
| 実施例 1  | 100         | 50     | —           | 5                      | —                      | 20      | 80        | 202              | V-0                     | 97            | 60                      |
| 実施例 2  | 100         | 50     | —           | 10                     | —                      | 20      | 80        | 205              | V-0                     | 92            | 50                      |
| 実施例 3  | 100         | 50     | —           | —                      | 10                     | 20      | 80        | 197              | V-0                     | 102           | 65                      |
| 実施例 4  | 100         | 50     | —           | —                      | 15                     | 25      | 35        | 195              | V-0                     | 104           | 70                      |
| 実施例 5  | 100         | 100    | —           | —                      | 15                     | 25      | 110       | 202              | V-0                     | 115           | 75                      |
| 実施例 6  | 100         | 50     | —           | 2.5                    | 7.5                    | 20      | 80        | 201              | V-0                     | 99            | 65                      |
| 実施例 7  | 100         | —      | 50          | 5                      | —                      | 20      | 80        | 209              | V-0                     | 92            | 55                      |
| 実施例 8  | 100         | —      | 50          | 10                     | —                      | 20      | 80        | 212              | V-0                     | 90            | 45                      |
| 実施例 9  | 100         | —      | 50          | —                      | 10                     | 20      | 80        | 204              | V-0                     | 95            | 65                      |
| 実施例 10 | 100         | —      | 50          | —                      | 15                     | 25      | 35        | 202              | V-0                     | 97            | 70                      |
| 実施例 11 | 100         | —      | 100         | —                      | 15                     | 25      | 110       | 209              | V-0                     | 98            | 75                      |
| 実施例 12 | 100         | —      | 50          | 2.5                    | 7.5                    | 20      | 80        | 208              | V-0                     | 93            | 60                      |
| 実施例 13 | 100         | 25     | 25          | —                      | 15                     | 25      | 35        | 202              | V-0                     | 101           | 50                      |
| 実施例 14 | 100         | 50     | 50          | —                      | 15                     | 25      | 110       | 209              | V-0                     | 111           | 70                      |
| 比較例 1  | 150         | —      | —           | 5                      | —                      | 20      | 80        | 206              | V-2                     | 75            | 35                      |
| 比較例 2  | 150         | —      | —           | 10                     | —                      | 20      | 80        | 205              | V-2                     | 70            | 30                      |
| 比較例 3  | 150         | —      | —           | —                      | 10                     | 20      | 80        | 209              | V-2                     | 81            | 35                      |
| 比較例 4  | 100         | 230    | —           | —                      | 25                     | 40      | 180       | 58               | V-0                     | 125           | 75                      |
| 比較例 5  | 100         | 50     | —           | —                      | —                      | 25      | 75        | 205              | HB                      | 95            | 40                      |
| 比較例 6  | 100         | 50     | —           | 5                      | 5                      | 20      | —         | 71               | V-2                     | 45            | 15                      |
| 比較例 7  | 100         | 50     | —           | 15                     | 15                     | —       | 70        | 205              | HB                      | 108           | 45                      |
| 比較例 8  | 100         | —      | 230         | —                      | 25                     | 40      | 180       | 195              | V-1                     | 117           | 65                      |
| 比較例 9  | 100         | —      | 50          | —                      | —                      | 25      | 75        | 205              | HB                      | 92            | 30                      |
| 比較例 10 | 100         | —      | 50          | 5                      | 5                      | 20      | —         | 71               | V-2                     | 41            | 10                      |
| 比較例 11 | 100         | —      | 50          | 15                     | 15                     | —       | 70        | 205              | HB                      | 105           | 40                      |

【0063】

【表 2】



表 2 (1)

| 例      | 組成物 (重量部)   |        |             |             |             |     |           |           |     |     |     |           |                |     |     |     |              |     |     |                  |
|--------|-------------|--------|-------------|-------------|-------------|-----|-----------|-----------|-----|-----|-----|-----------|----------------|-----|-----|-----|--------------|-----|-----|------------------|
|        | P<br>B<br>T | P<br>C | P<br>E<br>T | 72/-h<br>樹脂 | 72/-h<br>樹脂 | 赤リン | ガラス<br>繊維 | ポリオレフィン樹脂 |     |     | タルク | ワヤ素<br>樹脂 | シリ<br>コン<br>樹脂 | 滑剤  |     |     | カーボン<br>ブラック | 安定剤 |     | 3価<br>リン化<br>化合物 |
|        |             |        |             |             |             |     |           | F-1       | F-2 | F-3 |     |           |                | J-1 | J-2 | J-3 |              | L-1 | L-2 |                  |
|        |             |        |             |             |             |     |           |           |     |     |     |           |                |     |     |     |              |     |     |                  |
| 実施例 15 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 16 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | -   | 5   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 17 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 18 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 19 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 20 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | 0.2              |
| 実施例 21 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 22 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 23 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 24 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 25 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 26 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 27 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 28 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 29 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 30 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 31 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 32 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 33 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 34 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 35 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 36 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 37 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 38 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 実施例 39 | 100         | 25     | 75          | 5           | 5           | 20  | 80        | -         | 5   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 比較例 12 | 100         | 50     | -           | 5           | 5           | 20  | 80        | 5         | -   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |
| 比較例 13 | 100         | -      | 50          | 5           | 5           | 20  | 80        | 5         | -   | -   | -   | -         | -              | -   | -   | -   | -            | -   | -   | -                |

【0064】

【表 3】

【0065】表1の実施例1～14に示すように、PBTに、本発明の特定量のPCおよび／またはPET、フェノール樹脂および／またはフェノキシ樹脂、赤リンおよび繊維強化材を配合することにより、耐熱性、耐衝撃性および耐ヒートサイクル性に優れ、かつ優れた難燃性の車載用電気・電子部品用に好適な樹脂組成物が得られる。また、表1の比較例1～11に示すように、PBTに、PCもPETも配合されていない場合、PCおよび／またはPETの配合量が多過ぎる場合、あるいは必須成分の何れか1種が添加されていない場合は、優れた上記の特性の一部もしくは難燃性のいずれかの特性が大きく劣り、車載用電気・電子部品として使用に耐えうる材料でない。

【0066】表2の実施例15～39より、本発明で特定したポリオレフィン樹脂を併用配合すると、本発明の優れた特性を保持しつつ、衝撃強度に大きな改善効果が認められた。また、本発明の組成物にタルクと滑剤の何れかもしくは併用配合すると、本発明の優れた特性を保持しつつ、成形品外観の改善に効果が認められた。また、本発明の組成物にフッ素系樹脂、シリコン系化合物および安定剤の何れかもしくは併用配合することによって、更に向上した難燃性が得られた。

【0067】また、表2の実施例20、26、39のように、本発明の(B)成分としてPCを用い、かつ滑剤

として、I-1（脂肪酸エステルの一部をカルシウム塩にした滑剤）を配合した場合、3価のリン化合物やホスファイト系安定剤を併用配合することが良好な耐熱性と難燃性のために好適である。表2の実施例23、26等のように、本発明によると、カーボンブラックを併用配合しても優れた性能を維持することができるので、黒着色品で使用することもできる。また、表2の比較例12～13のように、ポリオレフィン樹脂としてポリプロピレンを用いた場合は、耐熱性と射出成形性には優れるものの、難燃性と衝撃強度が大きく損なわれるため、車載用電気・電子部品として使用に耐えうる材料でなかった。

#### 【0068】

【発明の効果】本発明により、PBTに、PCおよび／またはPET、フェノール樹脂および／またはフェノキシ樹脂、赤リンおよび繊維強化材を配合することによつて、難燃性、耐熱性、耐衝撃性および耐ヒートサイクル性に優れる車載用電気・電子部品用の非ハロゲン系難燃のポリブチレンテレフタレート用樹脂組成物が得られる。そして、その樹脂組成物から得られる本発明の車載用電気・電子部品は、それら部品で要求される難燃性、耐熱性、耐衝撃性および耐ヒートサイクル性を満足させることができる。

## フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

識別記号

C O 8 K 5/13

5/20

5/524

7/02

7/14

9/04

9/08

C O 8 L 23/00

69/00

// B 2 9 C 45/14

(C O 8 L 67/02

69:00

23:00

61:06

71:12

27:12

83:04)

B 2 9 K 67:00

F I

C O 8 K 5/13

5/20

5/524

7/02

7/14

9/04

9/08

C O 8 L 23/00

69/00

B 2 9 C 45/14

テーマコード (参考)

(72) 発明者 山内 幸二

愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東  
レ株式会社名古屋事業場内

F ターム (参考) 4F206 AA03E AA04 AA16 AA24

AA25 AA28 AA33 AA37 AB06

AB07 AB11 AB16 AB18 AB22

AB25 AE00 AE09 AH17 AH33

JA07

4J002 BB034 BB054 BB064 BB074

BB104 BD144 BD154 BD164

BN054 CC033 CC043 CC053

CE003 CF06X CF07W CG00X

CL064 CP034 CP054 CP094

DA017 DA039 DA056 DH048

DJ008 DJ038 DJ048 DJ058

DL007 EN109 EW069 FA047

FB076 FB086 FB087 FB097

FB266 FD017 FD136 GN00

GQ00